

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2003-246014

(43)Date of publication of application : 02.09.2003

(51)Int.CI.

B32B 27/00
C09J 7/02
C09J145/00
C09J165/00
C09J201/00
G02B 5/30

(21)Application number : 2002-050694

(71)Applicant : NIPPON ZEON CO LTD

(22)Date of filing : 27.02.2002

(72)Inventor : UEJIMA MITSUGI

(54) LAMINATE

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide an optical laminate excellent in durability and adhesion strength in a harsh environment of the use.

SOLUTION: The laminate comprises at least one thin-film layer (A) of an alicyclic structure containing polymer and at least one layer (B) of an adhesive of which the volatile content is 3 wt.% or below and of which the total contents of a chain-like hydrocarbon solvent, an alicyclic hydrocarbon solvent and an aromatic hydrocarbon solvent are 0–0.5 wt.%. The layer (A) and the layer (B) are laminated adjacently.

LEGAL STATUS

[Date of request for examination] 10.08.2004

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

BEST AVAILABLE COPY

(19)日本国特許庁 (JP)

(12) 公開特許公報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開2003-246014

(P2003-246014A)

(43)公開日 平成15年9月2日(2003.9.2)

(51)Int.Cl.⁷
B 3 2 B 27/00
C 0 9 J 7/02
145/00
165/00
201/00

識別記号

F I
B 3 2 B 27/00
C 0 9 J 7/02
145/00
165/00
201/00

テマコード(参考)
A 2 H 0 4 9
Z 4 F 1 0 0
4 J 0 0 4
4 J 0 4 0

審査請求 未請求 請求項の数 5 O L (全 7 頁) 最終頁に続く

(21)出願番号 特願2002-50694(P2002-50694)

(71)出願人 000229117

日本ゼオン株式会社

東京都千代田区丸の内2丁目6番1号

(22)出願日 平成14年2月27日(2002.2.27)

(72)発明者 上島 貢

神奈川県川崎市川崎区夜光一丁目2番1号

日本ゼオン株式会社総合開発センター内

最終頁に続く

(54)【発明の名称】 積層体

(57)【要約】

【課題】 過酷な使用環境下での耐久性、及び接着強度に優れた光学用積層体を提供すること。

【解決手段】 積層体中に、脂環式構造含有重合体の薄膜の層(A)、及び、揮発成分量が3重量%以下であり、且つ、鎖状炭化水素系溶媒、脂環族炭化水素系溶媒及び芳香族炭化水素系溶媒の合計含有量が0~0.5重量%である粘接着剤の層(B)をそれぞれ1層以上含ませ、層(A)と層(B)とを隣接して積層する。

BEST AVAILABLE COPY

【特許請求の範囲】

【請求項1】 脂環式構造含有重合体の薄膜の層

(A)、及び、揮発成分量が3重量%以下であり、且つ、鎖状炭化水素系溶媒、脂環族炭化水素系溶媒及び芳香族炭化水素系溶媒の合計含有量が0～0.5重量%である粘接着剤の層(B)をそれぞれ1層以上有し、層(A)と層(B)とが隣接している光学用積層体。

【請求項2】 層(A)が延伸されたものである請求項1記載の積層体。

【請求項3】 脂環式構造含有重合体が、重合体中にビシクロ[3,3,0]オクタン構造を有する繰り返し単位を55～90重量%含有するものである請求項1又は2記載の積層体。

【請求項4】 請求項2記載の積層体の粘接着剤層(B)側に、さらに延伸透明樹脂層を積層してなる積層体。

【請求項5】 位相板である請求項4記載の積層体。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、脂環式構造含有重合体を主成分とする薄膜層と粘接着剤層とを積層した光学用積層体に関し、さらに詳しくは、液晶ディスプレイ用として好適な光学用積層体に関する。

【0002】

【従来の技術】液晶ディスプレイは、液晶表示素子の上下に、複数の光学フィルムが設置されて構成されている。特に液晶表示素子の上側(視認側)には、通常、位相板、偏光板が順次重ねられている。また、さらにその上に、反射防止フィルムやタッチパネルが設置されている場合もある。これらの中で、液晶表示素子のセル基板、位相板、偏光膜の保護フィルム、反射防止フィルムやタッチパネルの基板などに脂環式構造含有重合体を使用することが提案されている。熱可塑性飽和ノルボルネン系樹脂フィルムを、上記の偏光膜の保護フィルム、液晶表示素子のセル基板、タッチパネル基板及び位相板などの液晶ディスプレイ用の部品として使用する場合、フィルムの水蒸気透過度が小さいほど、過酷な使用環境下でのこれら部品の耐久性が向上し好適である。ところで、上記の部品は、光学性能の安定化や耐久性の向上を目的として、相互に接着固定されていることが好ましく、その場合に、粘着剤や接着剤が用いられている。

【0003】例えば特開2001-350017号公報には、熱可塑性飽和ノルボルネン系樹脂からなるフィルムであって、残留位相差が100nm以上かつ1500nm以下である位相差フィルムが開示され、該位相差フィルムを透明基板に貼りあわせる場合の粘着剤として、水分散アクリル粘着剤が好ましい旨記載されている。ところが、該水分散アクリル粘着剤を用いた場合には、フィルムの水蒸気透過度が20g/m²・24hr未満であると、粘着剤の溶媒である水分が拡散せず、結果的に

後工程での膨れ、剥がれなどが起きると報告されている。

【0004】

【発明が解決しようとする課題】従って本発明の目的は、上記のような液晶ディスプレイ用の部品として、過酷な使用環境下で使用しても耐久性及び機械的強度に優れ、水蒸気透過度が小さい熱可塑性飽和ノルボルネン系樹脂フィルムを用いても後工程や使用環境においても界面に膨れや剥がれが生じない光学用積層体を提供することにある。

【0005】

【課題を解決するための手段】本発明者は、前記課題を解決すべく鋭意検討した結果、熱可塑性ノルボルネン系樹脂のフィルムに、揮発成分量が特定値以下であり、且つ、特定の炭化水素系溶媒の含有量が特定値以下である粘接着層を積層し、該粘接着層を介して他のフィルム等と接着することにより、接着後に熱可塑性ノルボルネン系樹脂のフィルムと粘接着剤層との界面に膨れや剥がれが生じず、フィルムに微細なクラック等が発生しないために、機械的強度及び高温高湿環境下での耐久性が向上することを見出し、この知見に基づいて本発明を完成するに至った。

【0006】かくして本発明によれば、

1. 脂環式構造含有重合体の薄膜の層(A)、及び、揮発成分量が3重量%以下であり、且つ、鎖状炭化水素系溶媒、脂環族炭化水素系溶媒及び芳香族炭化水素系溶媒の合計含有量が0～0.5重量%である粘接着剤の層(B)をそれぞれ1層以上有し、層(A)と層(B)とが隣接している光学用積層体、

2. 層(A)が延伸されたものである1記載の積層体、
3. 脂環式構造含有重合体が、重合体中にビシクロ[3,3,0]オクタン構造を有する繰り返し単位を55～90重量%含有するものである1又は2記載の積層体、

4. 上記2記載の積層体の粘接着剤層(B)側に、さらに延伸透明樹脂層を積層してなる3層積層体、
5. 位相板である上記4記載の積層体、がそれぞれ提供される。

【0007】

【発明の実施の形態】本発明の積層体は、脂環式構造含有重合体の薄膜の層(A)、及び、揮発成分量が3重量%以下であり、且つ、鎖状炭化水素系溶媒、脂環族炭化水素系溶媒及び芳香族炭化水素系溶媒の合計含有量が0～0.5重量%である粘接着剤の層(B)をそれぞれ1層以上有し、層(A)と粘接着剤層(B)とが隣接していることを特徴とする。

【0008】層(A)は脂環式構造含有重合体からなる。脂環式構造含有重合体樹脂は、重合体の繰り返し単位中に脂環式構造を含有するものであり、脂環式構造は主鎖及び側鎖のいずれにあってもよい。脂環式構造とし

ては、シクロアルカン構造、シクロアルケン構造などが挙げられるが、熱安定性等の観点からシクロアルカン構造が好ましい。脂環式構造を構成する炭素原子数は、通常4~30個、好ましくは5~20個、より好ましくは5~15個である。脂環式構造を構成する炭素原子数がこの範囲にあると、耐熱性及び柔軟性に優れた保護層を得られる。脂環式構造を有する繰り返し単位の脂環式構造含有重合体樹脂中の割合は、使用目的に応じて適宜選択されればよいが、通常50重量%以上、好ましくは70重量%以上、より好ましくは90重量%以上である。脂環式構造を有する繰り返し単位の割合が過度に少ないと耐熱性が低下し好ましくない。なお、脂環式構造含有重合体樹脂における脂環式構造を有する繰り返し単位以外の繰り返し単位は使用目的に応じて適宜選択される。

【0009】脂環式構造含有重合体樹脂の具体例としては、(1)ノルボルネン系重合体、(2)単環の環状オレフィンの重合体、(3)環状共役ジエンの重合体、(4)ビニル脂環式炭化水素重合体、及び(1)~(4)の水素化物などが挙げられる。これらの中でも、耐熱性、機械的強度等の観点から、ノルボルネン系重合体水素化物、ビニル脂環式炭化水素重合体及びその水素化物などが好ましい。

【0010】ノルボルネン系重合体は、ノルボルネン及びその誘導体、テトラシクロドデセン及びその誘導体、ジシクロペンタジエン及びその誘導体、メタノテトラヒドロフルオレンおよびその誘導体などのノルボルネン系モノマーを主成分とするモノマーの重合体であり、具体的には、①ノルボルネン系モノマーの開環重合体、②ノルボルネン系モノマーとこれと開環共重合可能な他のモノマーとの開環共重合体、③ノルボルネン系モノマーの付加重合体、④ノルボルネン系モノマーとこれと共に重合可能な他のモノマーとの付加共重合体、及び①~④の水素添加物などが挙げられる。これらの中でも、耐熱性、機械的強度等の観点から、ノルボルネン系モノマーの開環重合体水素化物が最も好ましい。

【0011】本発明に用いる脂環式構造含有重合体は、ビシクロ[3.3.0]オクタン構造を有する繰り返し単位を重合体中に55~90重量%含有していることが好ましく、このような重合体は、上記ジシクロペンタジエン及びその誘導体を55~90重量%含有するノルボルネン系モノマーを開環重合し、水素添加することにより得ることができる。ビシクロ[3.3.0]オクタン構造を有する繰り返し単位の含有量が上記範囲にあると、薄膜層(A)に、使用環境等において微細なクラック等が生じずに、機械強度に優れた積層体を得ることができる。ノルボルネン系重合体、単環の環状オレフィンの重合体又は環状共役ジエンの重合体の分子量は、使用目的に応じて適宜選択されるが、シクロヘキサン溶液(重合体樹脂が溶解しない場合はトルエン溶液)のゲル・パーミエーション・クロマトグラフ法で測定したポリソブレンまたはポリスチレン換算の重量平均分子量で、通常10,000~300,000、好ましくは15,000~250,000、より好ましくは20,000~200,000の範囲であるときに、成形体の機械的強度及び成形加工性とが高度にバランスされて好適である。

【0012】ビニル脂環式炭化水素重合体は、ビニルシクロアルカン又はビニルシクロアルケン由来の繰り返し単位を有する重合体であり、例えば、ビニルシクロヘキセン、ビニルシクロヘキサンなどの、ビニル基を有するシクロアルカンやビニル基を有するシクロアルケン、すなわちビニル脂環式炭化水素化合物の重合体及びその水素化物；スチレン、 α -メチルスチレンなどのビニル芳香族炭化水素化合物の重合体の芳香環部分の水素化物；などを用いることができる。ビニル脂環式炭化水素重合体は、ビニル脂環式炭化水素化合物やビニル芳香族炭化水素化合物と、これらの単量体と共に重合可能な他の単量体とのランダム共重合体、ブロック共重合体などの共重合体及びその水素化物であってもよい。ブロック共重合体としては、ジブロック、トリブロック、またはそれ以上のマルチブロックや傾斜ブロック共重合体などが挙げられるが、特に制限はない。ビニル脂環式炭化水素重合体の分子量は、使用目的に応じて適宜選択されるが、シクロヘキサン溶液(重合体樹脂が溶解しない場合はトルエン溶液)のゲル・パーミエーション・クロマトグラフ法で測定したポリソブレンまたはポリスチレン換算の重量平均分子量で、通常10,000~300,000、好ましくは15,000~250,000、より好ましくは20,000~200,000の範囲であるときに、成形体の機械的強度及び成形加工性とが高度にバランスされて好適である。

【0013】脂環式構造含有重合体のガラス転移温度(T_g)は、使用目的に応じて適宜選択されればよいが、通常、80°C以上、好ましくは100°C~250°C、より好ましくは120°C~200°Cの範囲である。この範囲において、耐熱性と成形加工性とが高度にバランスされ好適である。

【0014】本発明においては、上記の脂環式構造含有重合体樹脂を成形して層(A)を得ることができる。層(A)の形成方法としては、例えば、加熱溶融成形法や溶液流延法を用いることができる。加熱溶融成形法は、さらに詳細に、押し出し成形法、プレス成形法、インフレーション成形法、射出成形法、ブロー成形法、延伸成形法などに分類できるが、これらの方法の中でも、機械的強度、表面精度等に優れたフィルムを得るために、押出成形法、インフレーション成形法、及びプレス成形法が好ましく、押出成形法が最も好ましい。成形条件は、使用目的や成形方法により適宜選択されるが、加熱溶融成形法による場合は、シリンダー温度が、通常、1

40 45 リソブレンまたはポリスチレン換算の重量平均分子量で、通常5,000~500,000、好ましくは8,000~200,000、より好ましくは10,000~100,000、最も好ましくは25,000~50,000の範囲であるときに、フィルム(A)の機械的強度、及び成形加工性とが高度にバランスされて好適である。

40 45 【0012】ビニル脂環式炭化水素重合体は、ビニルシクロアルカン又はビニルシクロアルケン由来の繰り返し単位を有する重合体であり、例えば、ビニルシクロヘキセン、ビニルシクロヘキサンなどの、ビニル基を有するシクロアルカンやビニル基を有するシクロアルケン、すなわちビニル脂環式炭化水素化合物の重合体及びその水素化物；スチレン、 α -メチルスチレンなどのビニル芳香族炭化水素化合物の重合体の芳香環部分の水素化物；などを用いることができる。ビニル脂環式炭化水素重合体は、ビニル脂環式炭化水素化合物やビニル芳香族炭化水素化合物と、これらの単量体と共に重合可能な他の単量体とのランダム共重合体、ブロック共重合体などの共重合体及びその水素化物であってもよい。ブロック共重合体としては、ジブロック、トリブロック、またはそれ以上のマルチブロックや傾斜ブロック共重合体などが挙げられるが、特に制限はない。ビニル脂環式炭化水素重合体の分子量は、使用目的に応じて適宜選択されるが、シクロヘキサン溶液(重合体樹脂が溶解しない場合はトルエン溶液)のゲル・パーミエーション・クロマトグラフ法で測定したポリソブレンまたはポリスチレン換算の重量平均分子量で、通常10,000~300,000、好ましくは15,000~250,000、より好ましくは20,000~200,000の範囲であるときに、成形体の機械的強度及び成形加工性とが高度にバランスされて好適である。

40 45 【0013】脂環式構造含有重合体のガラス転移温度(T_g)は、使用目的に応じて適宜選択されればよいが、通常、80°C以上、好ましくは100°C~250°C、より好ましくは120°C~200°Cの範囲である。この範囲において、耐熱性と成形加工性とが高度にバランスされ好適である。

40 45 【0014】本発明においては、上記の脂環式構造含有重合体樹脂を成形して層(A)を得ることができる。層(A)の形成方法としては、例えば、加熱溶融成形法や溶液流延法を用いることができる。加熱溶融成形法は、さらに詳細に、押し出し成形法、プレス成形法、インフレーション成形法、射出成形法、ブロー成形法、延伸成形法などに分類できるが、これらの方法の中でも、機械的強度、表面精度等に優れたフィルムを得るために、押出成形法、インフレーション成形法、及びプレス成形法が好ましく、押出成形法が最も好ましい。成形条件は、使用目的や成形方法により適宜選択されるが、加熱溶融成形法による場合は、シリンダー温度が、通常、1

50～400℃、好ましくは200～350℃、より好ましくは230～330℃の範囲で適宜設定される。樹脂温度が過度に低いと流動性が悪化し、フィルムにヒケやひずみを生じ、樹脂温度が過度に高いと樹脂の熱分解によるボイドやシルバーストリークが発生したり、フィルムが黄変するなどの成形不良が発生するおそれがある。

【0015】層(A)は、上記の樹脂以外に、必要に応じて、プラスチックフィルムに一般的に配合することができる添加剤を含有していてもよい。そのような添加剤としては、酸化防止剤、熱安定剤、耐光安定剤、紫外線吸収剤、帯電防止剤、滑剤、可塑剤、及び充填剤などが挙げられ、その含有量は本発明の目的を損ねない範囲で選択することができる。これらの添加剤は脂環式構造含有重合体樹脂に添加して層(A)を形成すればよい。

【0016】層(A)の厚みは、使用目的に応じて適宜に選択できるが、偏光膜の保護フィルム、位相板、液晶セル基板及び透明導電基板などとして用いる場合には、通常は5～200μm、好ましくは10～100μm、より好ましくは20～80μmである。厚みが5μm未満であるとフィルムの機械的強度が低下し、さらに、積層体を高温高湿度環境下においていたときに反り等が生じやすくなる。厚みが200μmを超えるとフィルムの光線透過率が低下し、さらに、各々のフィルムを接着する際の粘接着剤の乾燥が不十分となって偏光膜の耐久性が低下する。したがって、層(A)の厚みが上記範囲にあると、機械的強度及び耐久性に優れた積層体が得られる。

【0017】また、層(A)を位相板として使用する場合には、延伸されていることが好ましい。延伸は一軸延伸でも二軸延伸でも構わない。延伸倍率は、1.1～3倍が好ましく、1.2～2.2倍が最も好ましい。

【0018】粘接着剤層(B)

粘接着剤層(B)は、上記薄膜層(A)に隣接しており、揮発成分量が好ましくは2重量%以下であり、且つ、鎖状炭化水素系溶媒、脂環族炭化水素系溶媒及び芳香族炭化水素系溶媒の合計含有量が好ましくは0～0.3%である。粘接着剤層(B)中の揮発成分は、粘接着剤の主成分である下記の樹脂などを重合したり溶解、分散させる際に用いられる。水及び有機溶剤、該樹脂中などに残留する未反応モノマーである。本発明においては、層(B)中の揮発成分量を上記範囲とすることにより、粘接着剤層(B)と薄膜層(A)との界面の膨れや剥がれが生じなくなり、両層間の接着強度が向上し、積層体の使用環境における耐久性も向上する。鎖状炭化水素系溶媒としては、ノルマルヘキサン、ノルマルペントンなどが挙げられる。脂環族炭化水素系溶媒としては、シクロヘキサン、メチルシクロヘキサン、シクロペントン、メチルシクロペントン、デカリンなどが挙げられる。芳香族炭化水素系溶媒としては、トルエン、キレン、ベンゼンなどが挙げられる。本発明において、粘接

着剤層中の上記溶媒の含有量を、上記範囲とすることにより、層(A)と他の光学フィルムとの接着強度を向上させ、且つ、層(A)及びこれと接着するフィルムの微細なソルベントクラック等の発生が防止でき、積層体の耐久性、機械的強度が向上する。

【0019】粘接着剤層(B)の主要成分としては、液晶ディスプレイフィルム用の従来の粘接着剤に用いられているのと同様の成分を挙げることができる。具体的には、アクリル樹脂、ウレタン樹脂、シリコーン樹脂、エポキシ樹脂、ポリイミド樹脂、環化ゴム、イソブレンゴム、ブタジエンゴム、イゾブチレンゴム、スチレン・ジエン系熱可塑性エラストマー、スチレン・イソブレン系熱可塑性エラストマーなどのポリマーが挙げられる。粘接着剤層に、上記ポリマー成分以外に、必要に応じて、硬化剤、硬化助剤、炭酸カルシウムや酸化チタンなどの充填剤、可塑剤、界面活性剤(レベリング剤)、紫外線吸収剤、光安定剤、酸化防止剤、脱水剤、接着性付与剤、ポットライフ延長剤(アセチルアセトン、メタノール、オルト酢酸メチルなど)、ハジキ改良剤、などの、粘接着剤に一般的に配合されている添加剤を含有するものであってもよい。

【0020】粘接着剤層(B)は、上記ポリマー成分及び添加剤を必要に応じて溶媒に溶解させてなる粘接着剤を、薄膜層(A)に塗布し、溶媒を除去することによって形成する。薄膜層(A)と粘接着剤層(B)、及び粘接着剤層(B)と他の光学フィルムとの接着強度を向上させる目的で、鎖状炭化水素系溶媒、脂環族炭化水素系溶媒及び芳香族炭化水素系溶媒の少なくともいずれかを、上記粘接着剤を薄膜層(A)に塗布する前に添加し、塗布後に乾燥除去してもよい。本発明においては、上記塗布後の粘接着剤層(B)を、好ましくは80℃以上、より好ましくは90℃以上で、好ましくは50秒以上、好ましくは70秒以上加熱乾燥することにより、粘接着剤層(B)中の鎖状炭化水素系溶媒、脂環族炭化水素系溶媒及び芳香族炭化水素系溶媒の合計量を0.5重量%以下とすることができる。得られた粘接着剤層(B)の厚みは、通常は、0.5～100μm、好ましくは1～50μmである。

【0021】本発明の積層体は、薄膜層(A)が延伸されて応力が発生していても、高温高湿度下などの過酷な使用環境で該層(A)に微細なクラックやクレイズ等が発生しないため、耐久性や機械的強度に優れる。層(A)が延伸されている場合には、積層体の粘接着剤層(B)側に、更に他の延伸透明樹脂の層を積層して3層構造の積層体とすることにより、該3層構造の積層体を位相板として使用することができる。該位相板を広い波長領域において使用可能とするためには、他の延伸透明樹脂層も、脂環式構造含有重合体を主成分とするものであることが好ましい。上記3層構造の積層体は、薄膜層(A)側に、もう1層の粘接着剤層(B)を介して偏光

板（偏光膜の両側に保護フィルムを積層したもの）を積層することにより、位相板と偏光板との複合板として用いることができる。偏光膜の保護フィルムは、脂環式構造含有重合体であることが好ましい。本発明の積層体は、その両面に他の光学フィルムを複数積層することにより、液晶表示素子基板（液晶セル基板）、偏光板、位相板、タッチパネル、反射防止フィルムなどの複合された、液晶ディスプレイの部品として好適に使用することができる。

【0022】

【実施例】以下、本発明について、製造例、実施例及び比較例を挙げて、より具体的に説明するが、本発明の範囲はこれらの例に限定されるものではない。これらの例において、〔部〕及び〔%〕は、特に断りのない限り、重量基準である。また、各種物性の測定法は、次のとおりである。

【0023】（1）ガラス転移温度（T_g）は、示差走査熱量計（DSC法）により測定した。

（2）分子量は、特に記載しない限り、シクロヘキサンを溶媒とするグルバーミエーションクロマトグラフィー（GPC）で測定されるポリイソブレン換算値として測定した。

（3）脂環式構造含有重合体樹脂フィルムの厚さは、ダイヤル式厚さゲージにより測定した。

（4）粘接着剤層中の溶媒含有量は、積層体から粘着剤層を剥がしてテトラヒドロフランに溶解し、ガスクロマトグラフィーにより内部標準法を用いて測定した。

（5）積層体の機械的強度は、JIS K 7127に従い、2号型試験片を用いて実施した。測定機には、万能引張圧縮試験機（TCM-500CR：新興通信工業社製）を用い、引張速度50mm/秒で試験を実施した。破断強度が80MPa/mm²以上を○、80MPa/mm²以上未満を×とした。

（6）耐久試験

積層体を下記の環境下に順次さらした後、透明性、ヘイズの発生、変色、及び反り等の有無などを外観目視観察して評価した。

- ① 高温環境：80°C、湿度50%、500時間
- ② 高温高湿度環境その1：温度60°C、湿度90%、500時間
- ③ 高温高湿度環境その2：温度80°C、湿度90%、100時間
- ④ 低温環境：-30°C、湿度10%、500時間
- ⑤ 耐水環境：温度80°C、湿度90%にて、積層体の、下記延伸倍率1.3倍のフィルム側の面の上にウェットティッシュを載せて30分放置する。

【0024】〔製造例1〕窒素雰囲気下、脱水したシクロヘキサン500部に、1-ヘキセン0.82部、ジブチルエーテル0.15部、トリイソブチルアルミニウム0.30部を室温で反応器に入れ混合した後、45°Cに

保ちながら、トリシクロ[4.3.0.1².5]デカ-3,7-ジエン（ジシクロペントジエン、以下、DCPと略記）80部、1,4-メタノ-1,4,4a,9a-テトラヒドロフルオレン（以下、MTFと略記）50部、及びテトラシクロ[4.4.0.1².5.1⁷.1⁰]ードデカ-3-エン（以下、TCDと略記）70部からなるノルボルネン系モノマー混合物と、六塩化タンクステン（0.7%トルエン溶液）40部とを、2時間かけて連続的に添加し重合した。重合溶液にブチルグリシジルエーテル1.06部とイソプロピルアルコール0.52部を加えて重合触媒を不活性化し重合反応を停止させた。

【0025】次いで、得られた開環重合体を含有する反応溶液100部に対して、シクロヘキサン270部を加え、さらに水素化触媒としてニッケル-アルミナ触媒

（日揮化学社製）5部を加え、水素により5MPaに加圧して攪拌しながら温度200°Cまで加温した後、4時間反応させ、DCP/MTF/TCD開環重合体水素化ポリマーを20%含有する反応溶液を得た。濾過により

20 水素化触媒を除去した後、軟質重合体（クラレ社製；セブトン2002）、及び酸化防止剤（チバスペシャリティ・ケミカルズ社製；イルガノックス1010）を、いずれも重合体100部あたり0.1部、得られた溶液に添加して溶解させた。次いで、溶液から、シクロヘキサン及びその他の揮発成分を、円筒型濃縮乾燥器（日立製作所製）を用いて除去しつつ水素化ポリマーを溶融状態で押出機からストランド状に押し出し、冷却後ペレット化して回収した。重合体中の各ノルボルネン系モノマーの共重合比率を、重合後の溶液中の残留ノルボルネン類組成（ガスクロマトグラフィー法による）から計算したところ、DCP/MTF/TCD=40/25/35ではほぼ仕込組成に等しく、ノルボルネン環構造を有さない繰り返し単位の含有量は6.5%であった。この開環重合体水素添加物の、重量平均分子量（Mw）は35,000、水素添加率は99.9%、T_gは134°Cであった。

【0026】〔製造例2〕（脂環式構造含有重合体フィルムの製造）

製造例1で得られたペレットを、空気を流通させた熱風40 乾燥器を用いて70°Cで2時間乾燥して水分を除去した後、65mmφのスクリューを備えた樹脂溶融混練機を有するTダイ式フィルム溶融押出し成形機を使用し、溶融樹脂温度240°C、Tダイの幅300mmの成形条件で、厚さ100μmのフィルムを押し出し成形した。得られた100μmのフィルムは100mm/秒の延伸速度、延伸温度140°Cの自由収縮の一軸延伸によって、延伸倍率1.3倍と1.5倍の2種類の延伸フィルムにした。

【0027】〔製造例3〕（接着剤の調製）
50 市販の二液型ウレタン系接着剤（主剤：ポリエステル系

ポリウレタン樹脂の酢酸エチル溶液、日本ポリウレタン社製WWA-608S、硬化剤：ポリイソシアネートの酢酸エチル溶液、日本ポリウレタン社製HARDENE R110）を、主剤：硬化剤=100:10の重量比で混合した。固形分濃度は54%であった。これを混合物1とする。上記混合物1に、シクロヘキサンを固形分に対して2%となるように添加し、次いで、全固形分濃度が20%となるように酢酸エチルで希釈した。これを接着剤1とする。上記混合物1に、酢酸ブチル及びシクロヘキサンを、いずれも固形分に対して2%となるように添加し、次いで、固形分濃度が20%となるように酢酸エチルで希釈した。これを接着剤2とする。

【0028】〔実施例1〕 製造例2で得られた延伸倍率1.3倍の延伸フィルムの一面に、製造例3で得られた接着剤1をロールコータを用いて塗布し、100°Cの温*

*風を風速10m/秒で90秒間吹付けて接着剤を乾燥させた。次いで、上記延伸フィルムの接着剤塗布面に、製造例2で得られた延伸倍率1.5倍の延伸フィルムを、それぞれの延伸フィルムの光軸の交差角が60°になるように貼り合わせ、熱圧着ロールにより70°Cで圧着し、40°Cで3日間エージングした。得られた積層体は、550nmの波長における位相差が137.5nmとなる2枚貼り合わせ位相差板である。接着剤層中の揮発成分量、及びシクロヘキサン含有量はいずれも検出限界(10ppm)以下であった。得られた積層体の機械的強度、耐久性を上記方法により評価した。結果を表1に記載する。

【0029】

【表1】

	接着剤	接着剤層		接着剤層中の 溶媒量 (wt% / 固形分)			破断 強度	耐久性
		乾燥 条件	揮発成分 合計量 (wt% / 固形分)	酢酸 エチル	酢酸 ブチル	シクロ ヘキサン		
実施例 1	1	100°C、 90秒	検出 限界 以下	検出 限界 以下	—	検出 限界 以下	○	透過率 低下なし ヘイズなし 変色なし
実施例 2	1	100°C、 60秒	0.35	0.25	—	0.1	○	ヘイズなし 変色なし
実施例 3	2	100°C、 60秒	1.86	0.31	1.47	0.08	○	透過率 低下なし ヘイズなし 変色なし
比較例 1	1	100°C、 40秒	1.79	0.95	—	0.84	×	透過率 低下、 ヘイズ発生
比較例 2	2	100°C、 40秒	3.48	0.91	1.87	0.7	×	透過率 低下、 ヘイズ発生

【0030】〔実施例2〕温風による塗布後の接着剤層の乾燥条件を、100°C、60秒に変えた以外は、実施例1同様に積層体を製造した。接着剤層中の揮発成分量は0.35%、シクロヘキサン含有量は0.1%であった。以下、実施例1同様に評価した。耐久性評価で光線透過率が若干低下したが、実用上は問題ないレベルであった。結果を表1に記載する。

【0031】〔実施例3〕 製造例3で得られた接着剤2を用いた以外は、実施例2同様に積層体を製造した。接着剤層中の揮発成分量は1.86%、シクロヘキサン含有量は0.08%であった。以下、実施例1同様に評価した。結果を表1に記載する。

【0032】〔比較例1〕温風による塗布後の接着剤層の乾燥条件を、100°C、40秒に変えた以外は、実施例1同様に積層体を製造した。接着剤層中の揮発成分量は1.79%、シクロヘキサン含有量は0.84%であった。以下、実施例1同様に評価した。機械的強度が低下し、耐久性評価で光線透過率が低下し、ヘイズの発生も観察された。結果を表1に記載する。

【0033】〔比較例2〕 製造例3で得られた接着剤2を用いた以外は、比較例1同様に積層体を製造した。接着剤層中の揮発成分量は3.48%、シクロヘキサン含有量は0.7%であった。以下、実施例1同様に評価した。機械的強度が低下し、耐久性評価で光線透過率が低下し、ヘイズの発生も観察された。結果を表1に記載する。

【0034】〔比較例3〕 水分散型アクリル粘着剤を用いた以外は、比較例1同様に積層体を製造した。粘着剤層中に水分が3.2%残留していた。以下、実施例1同様に評価した。耐久性評価で、粘着剤層と延伸フィルムとの界面に微細な膨れが発生し、積層体のヘイズが上昇した。

【0035】

【発明の効果】本発明によれば、過酷な使用環境下での耐久性、及び機械的強度に優れ、粘着剤層とフィルムとの界面に膨れや剥がれが発生しない光学用偏光体を得ることができる。

フロントページの続き

(51) Int. Cl. 7	識別記号	F I	マークコード(参考)
G 02 B	5/30	G 02 B	5/30

F ターム(参考) 2H049 BA06 BA42 BC03 BC10 BC14
BC22
4F100 AK01C AK02A AR00B BA03
BA06 BA10A BA10C CA16B
CB01B CB02 EJ37A EJ37C
GB41 JB20B JL00 JL13B
JM02A JN01C YY00B
4J004 AA05 AA07 AA10 AA11 AA13
AA14 CA03 FA01 FA05
4J040 CA001 CA041 CA091 DB051
DF001 EC001 EF001 EH031
EK031 MA10 MA11 NA17